

⑤ Int.Cl.⁵

識別記号

庁内整理番号

④ 公開 平成2年(1990)9月7日

C 04 B 37/00

A

6359-4 G

審査請求 未請求 請求項の数 8 (全4頁)

⑥ 発明の名称 セラミックス用接合材料及び該接合材料を用いたセラミックスの接合方法

② 特 願 平1-305550

② 出 願 平1(1989)11月24日

優先権主張 ③ 昭63(1988)11月25日 ③ 日本(JP) ④ 特願 昭63-297793

⑦ 発 明 者 川 上 道 子 東京都板橋区前野町2丁目36番9号 旭光学工業株式会社
内

⑦ 出 願 人 旭光学工業株式会社 東京都板橋区前野町2丁目36番9号

⑦ 代 理 人 弁理士 三 浦 邦 夫

明 細 書

1. 発明の名称

セラミックス用接合材料及び該接合材料を用いたセラミックスの接合方法

2. 特許請求の範囲

(1) 水溶性高分子物質の水溶液中にセラミックス原料を充填剤として含有するセラミックス用接合材料。

(2) 充填剤を5～40重量%含有する請求項1記載の接合材料。

(3) 充填剤がセラミックス原料粉体を造粒後に、粉砕したものである請求項1又は2記載の接合材料。

(4) 充填剤が0.1～15 μ mの平均粒径を有するものである請求項1～3のいずれか1項に記載の接合材料。

(5) セラミックス原料がアバタイト、リン酸三カルシウム及びリン酸四カルシウムの1種又は2種以上である請求項1～4のいずれか1項に記載の接合材料。

(6) 水溶性高分子物質がメチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸、ポリアクリルアミド、ポリエチレンオキシド等のうちの1種又は2種以上である請求項1～5のいずれか1項に記載の接合材料。

(7) 同種のセラミックス材料から成り、焼成収縮率が同等な複数の成形体を請求項1記載の接合材料を用いて接着させ、焼成することの特徴とするセラミックスの接合方法。

(8) 成形体が圧粉体及び／又は多孔体である請求項7記載のセラミックスの接合方法。

3. 発明の詳細な説明

(利用分野)

本発明は、セラミックス用の接合材料及び該接合材料を用いたセラミックスの接合方法に関する。「従来技術及びその問題点」

セラミックスを接合する方法としては、有機系の接着剤の使用、加圧焼結による接合、無機介在層を溶解させて接合する方法、表面を金属化し、

これを介して接着する方法などが知られている。これらの方法のうち、接合体の使用状態で接着剤成分の溶出が起らない方法を探ることが理想的であるが、その意味では加圧焼結による接合が最も好ましい。しかしながら、加圧焼結法では、コストがかかり、また、形状によっては、加圧が困難となる。

「発明の目的」

本発明は、接合体の使用状態で接合材料成分が溶出しない安価なセラミックス用接合材料を提供するとともに、該接合材料を用いて操作コストの点でも安価にセラミックスの接合方法を提供することを目的とする。

本発明は、特に、接合体を生体材料として応用するのに好適な接合材料及び該接合材料を用いたセラミックスの接合方法を提供することを目的とする。

「発明の構成」

本発明によるセラミックス用接合材料は、水溶性高分子物質の水溶液中にセラミックス原料を充

各種のアパタイト、リン酸三カルシウム、リン酸四カルシウムなどのリン酸カルシウム系化合物、シリカ系化合物、アルミナ系化合物、ジルコニア系化合物などの各種のセラミックス原料が挙げられる。

充填剤としては、セラミックス原料粉体のまま用いてもよいが、原料粉体を噴霧乾燥によって造粒して球状の二次粒子とし、これを粉砕することにより焼結性を高めて用いるのが好ましい。充填剤は、 $0.1 \sim 15 \mu\text{m}$ の平均粒径を有するものが好ましい。

本発明の接合材料を製造するには、上記のような充填剤を水溶性高分子物質の水溶液と混合するか又は水溶性高分子物質と乾式混合した後水と混合する。いずれの場合でも、充填剤を5～40重量%配合するのが好ましい。充填剤が5重量%未満であると、界面の強度が低下し、40重量%を越えると、操作性が悪く、接着しにくい。

本発明によるセラミックス用接合材料は、同種のセラミックス材料から成り、焼成収縮率が同等

充填剤として含有することを特徴とする。

本発明の接合材料に用いる水溶性高分子物質としては、例えばメチルセルロース、カルボキシメチルセルロース、ヒドロキシエチルセルロース、ポリビニルアルコール、ポリアクリル酸、ポリアクリルアミド、ポリエチレンオキシド等のうちの1種又は2種以上を用いることができる。また、水溶性高分子物質の水溶液の濃度は、用いる水溶性高分子物質の種類によっても異なるが、一般に0.5～20重量%の範囲とする。0.5重量%未満では、初期接着力不足のため乾燥途中で壊れやすい。また、20重量%を越えると、水溶性高分子物質が充填剤の焼結を妨げるため、界面が弱くなる。

本発明において充填剤として用いるセラミックス原料は、接合すべき物体を構成するセラミックスと同一の物質であることを必要とする。充填剤としてのセラミックスと接合すべきセラミックスとが異種のものであると、焼結せず、接合体が得られない。セラミックス原料の具体例としては、

である成形体の接合に使用することができる。接着すべきセラミックス物体は、その焼成収縮率が異なると、焼成の過程で割れてしまうので、焼成収縮率が同等でなければならない。

緻密体同士を接合するには、接合すべきセラミックスを圧粉体の状態で接着し、本焼成を行う。また、多孔体同士を接合するには、接合すべきセラミックスを仮焼体の状態で接着して本焼成を行う。さらに、多孔体と緻密体とを接合する場合には、多孔体を仮焼体として圧粉体と接着し、本焼成を行う。

いずれの場合においても、本発明の接合材料を用いると、本焼成の途中で水溶性高分子物質は消失し、充填剤であるセラミックス粉体は、接合すべきセラミックスと一緒に焼結する。また、接合すべきセラミックスと同質のセラミックスを充填剤として含む接合材料を用いているため、焼結した接合材料は、接合した多孔体あるいは緻密体と同等の強度を有するので、強度の均一な接合体が得られる。

また、接合すべきセラミックスは、リン酸カルシウム系、シリカ系、アルミナ系、ジルコニア系などの各種のセラミックスであってよい。さらに、殊に、リン酸カルシウム系セラミックス、例えばハイドロキシアパタイトセラミックスを接合するため、本発明の接合材料を適用すれば、生体内で有害物質の溶出が起こらないので、極めて優れた生体材料が得られる。

「実施例」

次に、実施例に基づいて本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

実施例 1

メチルセルロースの2重量%水溶液（粘度：2%水溶液として20℃で3000～5300cp、メトキシ基による置換度27～32%、ゲル化温度50～55℃）を作り、この水溶液3重量部に対して平均粒径0.8μmのハイドロキシアパタイト（造粒後粉碎して焼結性を高めたもの）1重量部を充填剤として加えて良く練り合わせ、接合材

として、接合材料部分は、多孔体と同等の強度を有すると判定することができた。

実施例 2

直径2mm、厚さ1.5mmの円板状体に成形したハイドロキシアパタイトの圧粉体（相対密度：64%）と、直径9mm、長さ3mmの円柱状体に成形したハイドロキシアパタイトの圧粉体（相対密度：64%）を、ハイドロキシアパタイト粉末を静水圧プレスで1分間2tの圧力で圧縮することによって製造した。得られた圧粉体を実施例1で調製した接合材料で、接合材料層の厚さが約12～15μmとなるようにして相互に接着し、実施例1と同様の方法で焼成した。こうして第2図に示すような円板状体aと円柱状体bとの緻密質接合体を得た。

各接合体をaでクランプし、bに矢印の方向で力Pをかけ、破壊状態を観察することにより接合体の強度を測定した。

緻密質接合体の試料5個のうち、3個はaの部分が界面に付着して破壊しており、残りの2個は

料を調製した。

常用の過酸化水素発泡法によりハイドロキシアパタイト多孔体を作製した。すなわち、水142g、31%過酸化水素水及びハイドロキシアパタイト粉末50gを混合し、混合物を200ccのビーカー中に入れ、80℃の乾燥器中で24時間乾燥し、700℃で仮焼した。得られたハイドロキシアパタイト多孔体を5個の立方体（2×2×2cm）と5個の直方体（1×1×4cm）に切り出した。立方体試料を先に調製した接合材料を用いて直方体試料と、接合材料層の厚さが約20μmとなるようにして接着し、1200℃で4時間焼成して、第1図に示すようにそれぞれ立方体Aと直方体Bから成る5個の多孔質接合体を得た。

この接合体をAでクランプし、Bに矢印の方向で力Pをかけ、破壊状態を観察することにより、接合体の強度を測定した。その結果、5個の多孔体試料のうち2個は、Bの部分で折れ、残りの3個は、接着界面で破壊し、接合材料の部分は、Aの部分にも、Bの部分にも付着していた。したが

界面の凝集破壊であった。したがって、接合材料部分は、緻密体と同等の強度を有すると判定することができる。

実施例 3

ハイドロキシアパタイト原料粉末60重量%に対して40重量%のアイサワーD（出光石油化学社製、 $C_{10}H_{14}$ ）を混合し、一軸加圧成形で予備成形した後、圧力2000kg/cm²で1分間静水圧プレスで圧縮して直径20mm、高さ10mmの円板状圧粉体を製造した。この圧粉体を450℃で脱脂し、気孔率60%の仮焼多孔体を得た。

別に、ハイドロキシアパタイト原料粉末だけから圧粉体を同じ条件で作製し、450℃で仮焼して直径10mm、高さ25mmの円柱状緻密体（相対密度64%）を得た。

メチルセルロースの2%水溶液70重量%に対してハイドロキシアパタイト粉末30重量%を混合して調製した接合材料を用いて、上記円板状多孔体と円柱状緻密体とを、接合材料層の厚さが12～15μmとなるようにして接着させ、室温で2

時間乾燥させた後、1050℃で4時間焼成した（昇温・降御速度：100℃/時）。

得られた接合体について、実施例1と同様にして接合強度を測定したところ、同程度に良好な結果が得られた。

（発明の効果）

本発明の接合材料は、セラミックスに対して高い接着力を示す。本発明の接合材料を用いると、本焼成の途中で水溶性高分子物質が消失し、充填剤であるセラミックス粉体は、接合すべきセラミックスと一緒に焼結する。そのため、接合すべきセラミックスと同質のセラミックスを充填剤として含む接合材料を用いることにより、焼結した接合材料は、接合した多孔体あるいは緻密体と同等の強度を有するので、強度の均一な接合体が得られる。また、接合操作過程で加圧を必要としないので、接合体の形状に制限がなく、複雑な形状の接合体であっても容易に製造することができる。

したがって、殊に、リン酸カルシウム系セラミックスの接合に本発明の接合材料を適用すれば、

生体内で有害物質の溶出が起こらないので、極めて優れた生体材料が得られる。

4. 図面の簡単な説明

第1図は実施例1で得られた接合体の斜視図、第2図は実施例2で得られた接合体の斜視図である。

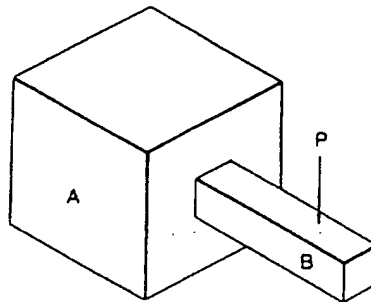
符号の説明

A・・・立方体、B・・・直方体

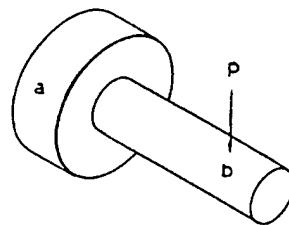
a・・・円板状体、b・・・円柱状体

特許出願人 旭光学工業株式会社

代理人 弁理士 三浦邦夫



第1図



第2図